

08-20-02



302.137

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Application of: :  
JOSEF SUREN :  
Serial No.: 10/617,104 :  
Filed: July 10, 2003 :  
For: POLYCONDENSATION...PREPARATION :

600 Third Avenue  
New York, N.Y. 10016  
August 18, 2003


PRIORITY DOCUMENT

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

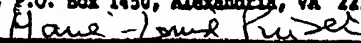
Sir:

With respect to the above-captioned application, Applicant claims the priority of  
the attached application as provided by 35 U.S.C. 119.

Respectfully submitted,  
Muserlian, Lucas and Mercanti

  
Charles A. Muserlian, 19,683  
Attorney for Applicant  
Tel. # (212) 661-8000

CAM:ds  
Enclosures: German priority document No. 102 31 851.4  
Filed: July 12, 2002  
Return receipt postcard

EL 992 576476 US  
"Express Mail" mailing label No. imp 18,03  
Date of Deposit imp 18,03  
I hereby certify that this paper or fee is  
being deposited with the United States Postal  
Service "Express Mail Post Office to Addressee"  
service under 27 CFR 1.10 on the date indicated  
above and is addressed to the Commissioner for  
Patents, P.O. Box 1450, Alexandria, VA 22313-1450  
  
8/18/03



## Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

**Aktenzeichen:** 102 31 851.4  
**Anmeldetag:** 12. Juli 2002  
**Anmelder/Inhaber:** Bakelite AG,  
Iserlohn/DE  
**Bezeichnung:** Polykondensationsprodukte, Verfahren zu ihrer  
Herstellung und Verwendung  
**IPC:** C 08 G, C 09 D, B 22 C

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 10. Juli 2003  
**Deutsches Patent- und Markenamt**  
**Der Präsident**  
Im Auftrag

A handwritten signature in black ink, likely belonging to the President of the German Patent and Trademark Office.

## Polykondensationsprodukte, Verfahren zu ihrer Herstellung und Verwendung

Die Erfindung betrifft neue, duroplastische Polykondensationsprodukte auf der Basis von Bisphenol-Rückständen.

Bisphenol-Rückstände sind Destillationsrückstände aus der Herstellung von Bisphenolen. Die in den weitaus größten Mengen anfallenden Rückstände sind die Destillationsrückstände aus der Herstellung von Bisphenol-A. Es sind harzartige Abfallprodukte, die bei der Herstellung von Bisphenol-A durch Kondensation von 2 Mol Phenol mit 1 Mol Aceton entstehen und die nach destillativer Abtrennung des Bisphenol-A als Rückstand verbleiben. Sie sind bei Raumtemperatur fest bis halbfest und klebrig und haben einen Erweichungspunkt im Bereich von 60 bis 70°C. Bei 75°C liegt ihre Viskosität im Bereich von etwa 5.000 bis 50.000 mPa's.

Es wird verschiedentlich versucht, diese Nebenprodukte weiter zu verwenden, um ihre ansonsten notwendig werdende Entsorgung als Sondermüll zu vermeiden.

So ist aus EP-A 0 533 850 bekannt, Gemische aus Rückständen aus der Bisphenol-A-Herstellung und Phenolharzen als Bindemittelgemische zur Herstellung hochtemperaturbeständiger Formstoffe einzusetzen.

Gemäß DE-A 19529030 wird Destillationsrückstand aus der Bisphenol-Herstellung ggf. nach dem Cracken einer oxidativen Behandlung unterzogen und/oder mit einem Epoxid umgesetzt und als Glanzkohlenstoffbildner für Gießereisande verwendet.

Dennoch besteht weiterhin Bedarf an Einsatzmöglichkeiten für Bisphenol-A-Rückstände, insbesondere an solchen Verwendungen, bei denen Bisphenol-A-Rückstände in einfacher Weise zu höherwertigen Produkten umgesetzt und eingesetzt wird.

Die Lösung der Aufgabe erfolgt durch Polykondensationsprodukte gemäß der Ansprüche 1 bis 3, durch Verfahren zu ihrer Herstellung gemäß der Ansprüche 4 und 5 sowie durch Verwendung dieser Polykondensationsprodukte zur Herstellung von feuerfesten Formteilen, feuerfesten ungeformten Massen sowie in Kombination mit Pulverlackrückständen als Bindemittel oder Bindemittelkomponente zur Herstellung von Faservlies-Formteilen gemäß der Ansprüche 6 bis 8.

Es wurde gefunden, daß sich Bisphenol-Rückstände, insbesondere Bisphenol-A-Rückstände in saurem Medium mit Aldehyden, insbesondere mit Formaldehyd umsetzen lassen. Dabei entstehen novolakartige, nicht klebrige Polykondensationsprodukte mit einem Schmelzpunkt im Bereich von 70 bis 90°C, die sich mit einem Härtungsmittel, in der Regel Hexamethylentetramin, aber auch mit Resolen oder Epoxidverbindungen bei Temperaturen oberhalb 100°C in an sich bekannter Weise zu einem nicht mehr schmelzbaren, vernetzten Produkt härten lassen.

Während die Bisphenol-Rückstände sich in gebräuchlichen Lösemitteln nur sehr schwer lösen, lösen sich überraschenderweise die aus ihnen hergestellten erfindungsgemäßen Polykondensationsprodukte in den technisch üblichen, hochsiedenden Lösemitteln, wie z.B. Ethylenglykol, Diethylenglykol, Polyglykolen, Phthalaten oder den mit der allgemeinen Bezeichnung DBE bezeichneten Estern. Dies ermöglicht die Herstellung von toxikologisch unbedenklichen Lösungen, die bei Raumtemperatur zu verarbeiten sind und damit die Herstellung geformter feuerfester Erzeugnisse nach an sich bekannten Verfahren und zwar sowohl im Kalt- als auch im Warmmischverfahren.

Die reinen erfindungsgemäßen Polykondensationsprodukte ergeben bei ihrer Carbonisierung eine geringere Kohlenstoffausbeute als Phenolnovolake. Überraschenderweise aber erhält man bei den mit den erfindungsgemäßen Polykondensationsprodukten hergestellten feuerfesten Erzeugnisse nach der Carbonisierung eine höhere Kohlenstoffausbeute und eine höhere Oxidationsbeständigkeit als bei entsprechenden, gemäß dem Stand der Technik mit Phenolnovolaken hergestellten feuerfesten Erzeugnissen.

Die erfindungsgemäßen Polykondensationsprodukte sind nicht klebrig und lassen sich bei Raumtemperatur mahlen. Die so hergestellten Pulverharze eignen sich aufgrund der vorgenannten Eigenschaften insbesondere zur Herstellung von ungeformten Massen, die im Feuerfestbereich eingesetzt werden.

Dabei können jeweils Mischungsaufbau und Herstellungsweise sowohl für die geformten feuerfesten Erzeugnisse als auch für die ungeformten Massen dem Stand der Technik entsprechen, wie er aus der Technologie der Phenol-Novolake bekannt ist.

Die Pulverharze eignen sich aber auch in Kombination mit Pulverlackrückständen als Bindemittel oder Bindemittelkomponente zur Herstellung von Faservlies-Formteilen, wobei ebenfalls die bekannten Technologien verwendet werden.

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Polykondensationsprodukte erfolgt gemäß den aus der Herstellung der Phenolnovolake bekannten Verfahren durch Umsetzung der Bisphenol-Rückstände mit einem Aldehyd, bevorzugt von Bisphenol-A-Rückstand mit Formaldehyd, unter katalytischer Wirkung einer Säure. Die Herstellung kann dabei sowohl in der Schmelze erfolgen als auch in wäßriger Dispersion. Die bevorzugte Säure ist Oxalsäure. Das bevorzugte molare Verhältnis von Bisphenol-Rückstand zu Aldehyd liegt im Bereich von 1 : 0,2 bis 1 : 0,8. Dem Reaktionsgemisch können noch zusätzlich phenolische Verbindungen, insbesondere Phenol oder Alkylphenole zugesetzt werden.

## Patentansprüche

1. Polykondensationsprodukte, hergestellt durch Umsetzung von Bisphenol-Rückständen mit einem Aldehyd in saurem Medium.
2. Polykondensationsprodukte nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Bisphenol-Rückstände Bisphenol-A-Rückstände sind.
3. Polykondensationsprodukte nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Aldehyd ein Formaldehyd ist.
4. Verfahren zur Herstellung von Polykondensationsprodukten gemäß der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß Rückstände aus der Bisphenol-Herstellung unter katalytischer Wirkung einer Säure mit einem Aldehyd umgesetzt werden.
5. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß dem Reaktionsgemisch aus Bisphenol-Rückstand und Aldehyd noch eine oder mehrere phenolische Verbindungen zugesetzt werden.
6. Verwendung der Polykondensationsprodukte gemäß der Ansprüche 1 bis 3 zur Herstellung von feuerfesten Formkörpern.
7. Verwendung der Polykondensationsprodukte gemäß der Ansprüche 1 bis 3 zur Herstellung von ungeformten Massen, die im Feuerfestbereich eingesetzt werden.
8. Verwendung der Polykondensationsprodukte gemäß der Ansprüche 1 bis 3 zusammen mit Pulverlackrückständen als Bindemittel oder Bindemittelkomponenten zur Herstellung von Faservlies-Formteilen.

## **Zusammenfassung**

Die Erfindung betrifft Polykondensationsprodukte, hergestellt durch Umsetzung von Bisphenol-Rückständen mit einem Aldehyd in saurem Medium. Die Produkte eignen sich insbesondere zur Herstellung von feuerfesten Formkörpern, von ungeformten Massen, die im Feuerfestbereich eingesetzt werden sowie zusammen mit Pulverlackrückständen als Bindemittel oder Bindemittelkomponenten zur Herstellung von Faservlies-Formteilen.